

10/520517

Rec'd PCT/PTE 01/27 JAN 2005
PCT/JP 03/15860

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

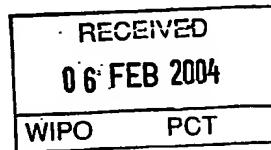
11.12.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2002年12月27日

出願番号
Application Number: 特願2002-382139
[ST. 10/C]: [JP2002-382139]



出願人
Applicant(s): 日産自動車株式会社

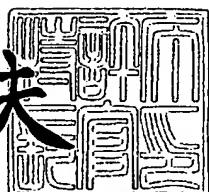
BEST AVAILABLE COPY

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 1月23日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3112551

【書類名】 特許願
【整理番号】 NM02-00443
【提出日】 平成14年12月27日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H01M 8/02
H01M 8/10

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

【氏名】 宮澤 篤史

【特許出願人】

【識別番号】 000003997

【氏名又は名称】 日産自動車株式会社

【代理人】

【識別番号】 100083806

【弁理士】

【氏名又は名称】 三好 秀和

【電話番号】 03-3504-3075

【選任した代理人】

【識別番号】 100068342

【弁理士】

【氏名又は名称】 三好 保男

【選任した代理人】

【識別番号】 100100712

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩▲崎▼ 幸邦

【選任した代理人】

【識別番号】 100087365

【弁理士】

【氏名又は名称】 栗原 彰

【選任した代理人】

【識別番号】 100100929

【弁理士】

【氏名又は名称】 川又 澄雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100095500

【弁理士】

【氏名又は名称】 伊藤 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100101247

【弁理士】

【氏名又は名称】 高橋 俊一

【選任した代理人】

【識別番号】 100098327

【弁理士】

【氏名又は名称】 高松 俊雄

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 001982

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9707400

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電解質膜の両面にガス拡散層が形成された電極膜構造体をセパレータで挟んで構成される燃料電池において、

セパレータのガス流路の外側に位置する電極膜構造体のガス拡散層の気孔率が、ガス流路に対向する位置における気孔率よりも小さいことを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】 セパレータのガス流路の外側を囲むようにセパレータの主面に対して凸となる部分を設けたことを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 3】 前記凸部の角を R 形状にしたことを特徴とする請求項 2 記載の燃料電池。

【請求項 4】 前記凸部はガス流路側が高くなっていることを特徴とする請求項 2 記載の燃料電池。

【請求項 5】 電極膜構造体とセパレータとの間に、ガス流路の外側に位置する電極膜構造体のガス拡散層の部分を圧縮する部材を介在したことを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 6】 前記ガス拡散層の部分を圧縮する部材が電気絶縁部材であることを特徴とする請求項 5 記載の燃料電池。

【請求項 7】 前記ガス拡散層の部分を圧縮する部材をセパレータとガス拡散層の間に位置させたことを特徴とする請求項 5 記載の燃料電池。

【請求項 8】 ガス流路の外側に位置する電極膜構造体のガス拡散層の部分があらかじめ圧縮されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 9】 ガス流路の外側に位置する電極膜構造体のガス拡散層の気孔率が電解質膜に対して等しく対称に構成されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は燃料電池に係り、特に固体高分子型の燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池は、水素ガスなどの燃料ガスと酸素を有する酸化ガスとを電解質を通して電気化学的に反応させ、電解質両面に設けた電極間から電気エネルギーを直接取り出すものである。特に固体高分子電解質を用いた固体高分子型燃料電池は、動作温度が低く、取り扱いが容易なことから電動車両用の電源として注目されている。すなわち、燃料電池車両は、高圧水素タンク、液体水素タンク、水素吸蔵合金タンクなどの水素貯蔵装置を車両に搭載し、そこから供給される水素と、酸素を含む空気とを燃料電池に送り込んで反応させ、燃料電池から取り出した電気エネルギーで駆動輪につながるモータを駆動するものであり、排出物質は水だけであるという究極のクリーン車両である。

【0003】

固体高分子型燃料電池の発電単位であるセルは、固体高分子電解質膜とその両側のアノードガス拡散層とカソードガス拡散層とで構成された電極膜構造体を、一対のセパレータで挟持した構造である。

【0004】

このようなセル内のガス拡散層、セパレータ及びガスケットに関する従来の技術には、例えば特許文献1のようなものがある。

【0005】

特許文献1記載の技術では、ガス拡散層（ガス拡散層）とそれを囲むガスケットとの隙間を抑制することによりガス拡散層とガスケット部の間のシール性を改善している。

【0006】

【特許文献1】

特開2001-319667号公報（第3頁、図1）

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、特許文献1記載の技術においては、ガス拡散層とその外周に配

置されるガスケットとの隙間を極力少なくすることで性能向上を期待できるが、ガス拡散層自体が多孔質であるために、反応ガスはセパレータに形成されたガス流路とガスケットとの間に配置されたガス拡散層内部を反応に関与せずに流れることができる。この結果、セパレータのガス入口に供給されたガスの一部が発電反応に寄与することなくガス出口まで無駄に流れ、発電効率が低下するという問題点があった。

【0008】

実際に従来のセル構造では、ガス拡散層をセパレータ上に配置する際に、セパレータに形成されたガス流路領域を完全に覆わねばならず、ガス拡散層自身の正確な位置決めも必要であることから、ガス拡散層を反応領域より大きく設定しなければならないことが多かった。

【0009】

したがって従来技術では、図8の符号18に示すように、セパレータ上のガス流路からガスケットまでの距離Lを数〔mm〕の大きさで設定し、ガスが反応せずに反応領域外を流れることを抑制しようとしていた。

【0010】

一方で、従来のガス流路幅は数〔mm〕であるため、上記未反応領域はガス流路1本以上の幅であり、それだけ反応領域の面積が減少して燃料電池の出力が低下する構造となっていた。上記特許文献1では、この問題点を十分に改善することは難しく、多孔質なガス拡散層内に流れるガスについては改善が難しい。

【0011】

本発明では導入したガスが反応領域外を無駄に流れることを抑止し、投入したガスが全て効率的に反応に関与できるようなガス拡散層、ガスケット及びセパレータの構造を備えた燃料電池を提案することにある。

【0012】

【課題を解決するための手段】

本発明は上記問題点を解決するため、電解質膜の両面にガス拡散層が形成された電極膜構造体をセパレータで挟んで構成される燃料電池において、セパレータのガス流路の外側に位置する電極膜構造体のガス拡散層の気孔率が、ガス流路に

対向する位置における気孔率よりも小さいことを要旨とする。

【0013】

【発明の効果】

本発明によれば、セパレータのガス流路の外側に位置する電極膜構造体のガス拡散層の気孔率が、ガス流路に対向する位置における気孔率よりも小さくしたので、ガス流路の外側に位置するガス拡散層を通じて流れる反応に寄与しないガス量を抑制し、燃料電池の効率を高めることができるという効果がある。

【0014】

【発明の実施の形態】

次に、図面を参照して、本発明の実施の形態を詳細に説明する。

【0015】

なお、本発明の実施形態及び比較例で示す燃料電池単位セルは、反応面積150 [mm] × 150 [mm]、セパレータサイズは200 [mm] × 200 [mm] × 2.5 [mm] サイズのグラファイト板に切削加工にてガス流路と冷却水路とを形成したもの、電解質膜及びガス拡散層の厚さはそれぞれ30 [μm]、280 [μm] の仕様のものを用いた。

【0016】

〈比較例〉

図8に、比較例としての従来の燃料電池の単位構成の概略図を示す。電解質膜1とこの両面に形成された2つのガス拡散層3とで電極膜構造体5が形成されている。この電極膜構造体5をカソードセパレータ9aとアノードセパレータ9bとで挟持するとともに、電極膜構造体5と各セパレータ9との間にガスケット7が配置されている。本比較例では、最も外側のガス流路13とガスケット7との間隔18の長さをL=4.5 [mm]とした。また、ガス拡散層3端部とガスケット7との隙間19の長さをS=1.2 [mm]とした。

【0017】

前述した仕様の各部材にてセルを組み立て、面圧1.0 [MPa] にて圧縮した。

【0018】

燃料電池の運転条件は、セル温度80[℃]、アノード側の反応ガスは水素、カソード側は空気を用い、水素空気共にセル温度における飽和水蒸気量の80[%]の水蒸気量を加湿した。

【0019】

〈第1実施形態〉

図1は、本発明に係る燃料電池の第1実施形態を示す概略断面図であり、説明の便宜上、電極膜構造体に対して面对称であるアノード側及びカソード側の2つのセパレータの一方のみ図示しているとともに、燃料電池を分解した状態で図示している。

【0020】

図1において、電解質膜1とこの両面に形成された2つのガス拡散層3とで電極膜構造体5が形成されている。この電極膜構造体5を両側（図1では一方のセパレータのみ図示している）からセパレータ9で挟持するとともに、電極膜構造体5と各セパレータ9との間にガスケット7が配置されている。セパレータ9には、正面に溝状のガス流路13が形成され、正面と反対側の面には、冷却水路15が形成されている。セパレータ9のガス流路13の外側には、ガスケット用溝11が形成されている。

【0021】

さらに、セパレータ9には、最も外側のガス流路13に接して正面よりもガス拡散層側へ高さtだけ突出する凸部21が形成されている。この凸部21は、セパレータ9が対向する電極膜構造体5のガス拡散層3の端部より内側に、セパレータ9を一周するように形成されている。

【0022】

図1の凸部21の位置は、図8の比較例では、最も外側のガス流路13とガスケット7との間隔18の位置で、ガス流路配置領域を囲む位置である。

【0023】

ガス拡散層3に用いる多孔質部材は、燃料電池を組み立てる際のセルの厚さ方向の圧縮により、適度な気孔率と導電率を保有させて使用する。

【0024】

多孔質のガス拡散層 3 に印加する面圧とガス拡散層の厚さとの関係を図 6 に示す。ガス拡散層にかける面圧を徐々に大きくしていくと、気孔が押しつぶされて、ガス拡散層の厚さが薄くなり、ガス拡散層が薄くなるほどその気孔率は減少する。

【0025】

多孔質なガス拡散層は、面圧が低い間は、面圧の増加に反比例してガス拡散層の厚さが減少する傾向を示すが、さらに面圧の増加とともに厚さの減少率が低下する。そして、面圧がある一定 (B) 以上になるとガス拡散層は潰れきって、これ以上面圧を上げても厚さの変化は殆んど無くなる傾向を示す。

【0026】

本実施形態においては、反応領域でのガス拡散層には面圧 A が作用し、厚さが t_A になっている。

【0027】

しかしながら、凸部 21 では凸部の高さ t 分だけガス拡散層を余分に圧縮することになり、この結果凸部 21 に接する部分でガス拡散層 3 の厚さは $t_A - t$ になる。具体的には、 $t = 30 [\mu\text{m}]$ とした。

【0028】

この時、凸部 21 に対向する位置のガス拡散層 3 は、ガス流路 13 に対向する発電面に比べて十分に圧縮され気孔率が発電面に比べて低下した状態になる。ガス拡散層 3 の圧縮量は、ガス流路 13 の外側に配置されるガス拡散層内にガスが流れる際の圧力損失が発電面のガス拡散層内を流れるガスの圧力損失より大きい程度が好ましく、より好ましくはガス流路 13 の外側に配置されるガス拡散層の多孔質構造が潰れきったガスの通過しない厚み t_B の状態が良い。また、凸部 21 の幅はセルを圧縮する際の面圧に合わせて適宜変更すればよい。

【0029】

また、アノード側とカソード側との両セパレータ 9 の凸部 21 を電解質膜 1 に対して対称に配置することで、電解質膜 1 に対してその両面のガス拡散層 3 を等しく圧縮して、ガス拡散層 3 の気孔率を小さくすることができる。これにより、電解質膜 1 に過剰な外力を生じさせることなく燃料電池を構成することができる

【0030】

以上説明した本実施形態によれば、導入された反応ガスの一部がセパレータ上に配置されたガス流路に従って流れずに電極領域よりはみ出たガス拡散層内を流れることを抑制できるので、導入したガスのすべてを反応させることができ、結果として燃料電池の効率を向上させることができる。

【0031】

また、従来多用されている多孔質部材の端部を樹脂等で封止する方法に比べて、本実施形態では、凸部の正面からの高さを一度決めてしまえば、プレス成形にてセパレータを作る際に何らの時間と費用をかけることなく効率的に作成することが可能である。

【0032】**〈第2実施形態〉**

図2は、本発明に係る燃料電池の第2実施形態を示す概略断面図であり、説明の便宜上、電極膜構造体に対して面对称であるアノード側及びカソード側の2つのセパレータの一方のみ図示しているとともに、燃料電池を分解した状態で図示している。

【0033】

図2の第2実施形態では、図1に示した第1実施形態の凸部21に比べて、凸部31の角（エッジ部）に丸みを付けたR形状になっている点に特徴がある。その他の構成は、図1に示した第1実施形態と同様であるので、同じ構成要素には同じ符号を付与して、重複する説明を省略する。

【0034】

このように凸部31のエッジ部を削除することにより、例えばカーボンペーパーのように脆い部材をガス拡散層3に用いた場合、部材のひび割れ等による機能低下を防ぐことが可能になる。一方で、第1実施形態と比較してガス拡散層との接触面積が減少するために、燃料電池スタックを圧縮する荷重が同じ場合でも、より大きな荷重を凸部31に対向する位置のガス拡散層3に掛けることができ、その部分の気孔率を更に小さくすることができる。

【0035】**〈第3実施形態〉**

図3は、本発明に係る燃料電池の第3実施形態を示す概略断面図であり、説明の便宜上、電極膜構造体に対して面对称であるアノード側及びカソード側の2つのセパレータの一方のみ図示しているとともに、燃料電池を分解した状態で図示している。

【0036】

図3の第3実施形態では、図1に示した第1実施形態の凸部21に比べて、凸部41の高さがガス流路13側とガスケット7側で異なっている点に特徴がある。その他の構成は、図1に示した第1実施形態と同様であるので、同じ構成要素には同じ符号を付与して、重複する説明を省略する。

【0037】

本実施形態では、最も高さの高い一方をガス流路13側にすることで、ガス拡散層3に集中的に荷重を掛けることができ、反応ガスがガス流路13からガスケット7側へ流れ出ることを最も効果的に抑制できる。本実施形態の場合、カーボンクロスをガス拡散層3として使用した。

【0038】**〈第4実施形態〉**

図4は、本発明に係る燃料電池の第4実施形態を示す概略断面図であり、説明の便宜上、電極膜構造体に対して面对称であるアノード側及びカソード側の2つのセパレータの一方のみ図示しているとともに、燃料電池を分解した状態で図示している。

【0039】

図4の第4実施形態では、図1の第1実施形態のような凸部21を設けることなく、ガスケット7を挟むように、ガスケット7の内側に絶縁部材51、ガスケット7の外側に絶縁部材52を配置した点に特徴がある。その他の構成は、図1に示した第1実施形態と同様であるので、同じ構成要素には同じ符号を付与して、重複する説明を省略する。

【0040】

絶縁部材 51 の厚さは、セルに所定の荷重を掛けた場合のガス拡散層の厚さと同等になるようにした。本実施形態では更にガスケット 7 より内側の絶縁部材 51 の厚さを第 1 実施形態と同様な手法により設定した。

【0041】

絶縁部材 51, 52 は、単位セル内でのアノード側セパレータとカソード側セパレータとの短絡を防止する目的も有し、また燃料電池の作動温度（100 [℃] 付近）に対する耐熱性、加湿運転による耐加水分解性、電解質膜に由来する耐酸性があるのが好ましく、公知の熱硬化性、熱可塑性樹脂のいずれを用いても構わない。

【0042】

また、絶縁部材 51 は電極膜構造体 5 に対して、アノード側とカソード側で面対称に構成することで、電極膜構造体 5 のガス拡散層 3 を等しく圧縮し、気孔率を小さくすることができる。これにより、電解質膜 1 に過剰な外力を生じさせることなく燃料電池を構成することができる。

【0043】

本実施形態によれば、セパレータ間の絶縁部材をガス拡散層の厚み調整部材として使用することができる。一般にガス拡散層をある規定値まで圧縮して使用するが、荷重のかけ方により圧縮の度合いが異なり、これが原因でガス拡散に相違が出るために性能のばらつきが大きくなる。そのために、いくら圧縮してもガス拡散層の圧縮具合がある厚さをたもたせることができるように絶縁部材の厚さをガス拡散層の圧縮厚さにすることで、すべてのセルにおいて均等なガス拡散層の厚みを確保できる。

【0044】

〈第 5 実施形態〉

図 5 は、本発明に係る燃料電池の第 5 実施形態を示す要部概略断面図であり、電極膜構造体の断面を示すものである。

【0045】

図 5 において、電解質膜 1 とこの両面に形成された 2 つのガス拡散層 3 とで電極膜構造体 5 が形成されている。この電極膜構造体 5 のガス拡散層 3 の端部 61

を両主面から圧縮したものである。この圧縮後に電極膜構造体5を前述の実施形態に適用して燃料電池スタックを組み立てる。

【0046】

この端部61の圧縮は、図6に示した圧縮曲線上で、ガス拡散層の厚さが変化しない程度(t_B)まで拡散層の端部61を圧縮するのが好ましい。

【0047】

これによると、燃料電池スタック組立て時の荷重をガス拡散層の厚さが t_A になるまででよく、組み付け荷重を小さくできる。

【0048】

本実施形態では、熱硬化性樹脂のメタノール溶液を作成し、ガス拡散層3に染み込ませた後、ガス拡散層3の端部61該当部分に圧縮プレスにて120[℃]、面圧2[MPa]相当の荷重を掛け樹脂を硬化させた。

【0049】

なお、ガス拡散層3の端部61をあらかじめ厚く形成した後に、圧縮して気孔率をあらかじめ小さくしておき、そして燃料電池に組み込んだ状態で発電領域の拡散層厚さが t_A になるようにしてもよい。この場合には、前述の凸部21, 31, 41, 51を形成しなくてもよい。

【0050】

また、ガス拡散層3の端部61の圧縮は、電解質膜1に対して対称に構成することで、電解質膜1に対してガス拡散層3を等しく圧縮し、気孔率を小さくすることができる。これにより、電解質膜に歪を生じさせることなく燃料電池を構成することができる。

【0051】

本実施形態によれば、発電に寄与しない領域に配置される電極膜構造体のガス拡散層をあらかじめ圧縮したものを使用することで、電池内に導入されるガスが発電に寄与しない領域を流れることを抑制できる。

【0052】

図7は比較例、第1実施形態および4の形態を実際に発電評価した場合のI-V特性で、共にガス拡散層としてカーボンペーパーを使用した。本発明を適用し

た実施形態によれば、従来例に対して全ての出力電流域において、出力電圧が向上していることが明らかである。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明に係る燃料電池の第1実施形態を示す概略断面図である。

【図2】

本発明に係る燃料電池の第2実施形態を示す概略断面図である。

【図3】

本発明に係る燃料電池の第3実施形態を示す概略断面図である。

【図4】

本発明に係る燃料電池の第4実施形態を示す概略断面図である。

【図5】

本発明に係る燃料電池の第5実施形態を示す電極膜構造体の概略断面図である

【図6】

面厚に対するガス拡散層の特性を示す図である。

【図7】

実施形態および比較例の実験結果を示す電流電圧特性図である。

【図8】

従来の燃料電池の構造を説明する断面概略図である。

【符号の説明】

1 … 電解質膜

3 … ガス拡散層

5 … 電極膜構造体

7 … ガスケット

9 … セパレータ

11 … ガスケット用溝

13 … ガス流路

15 … 冷却水路

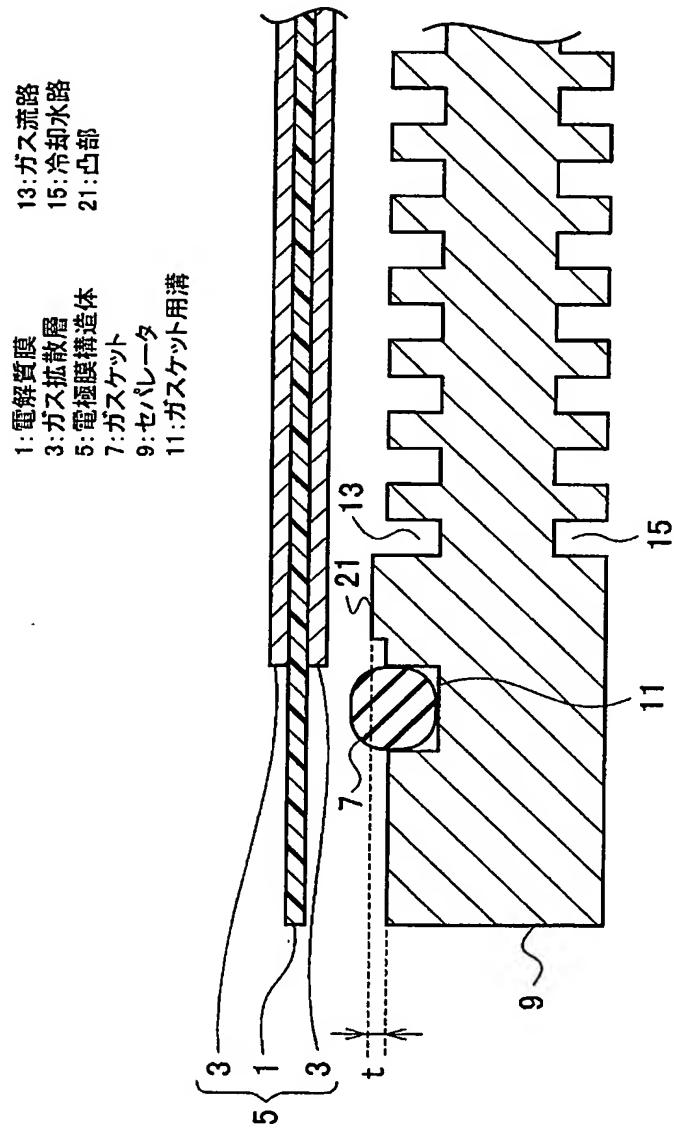
特願 2002-382139

ページ： 12/E

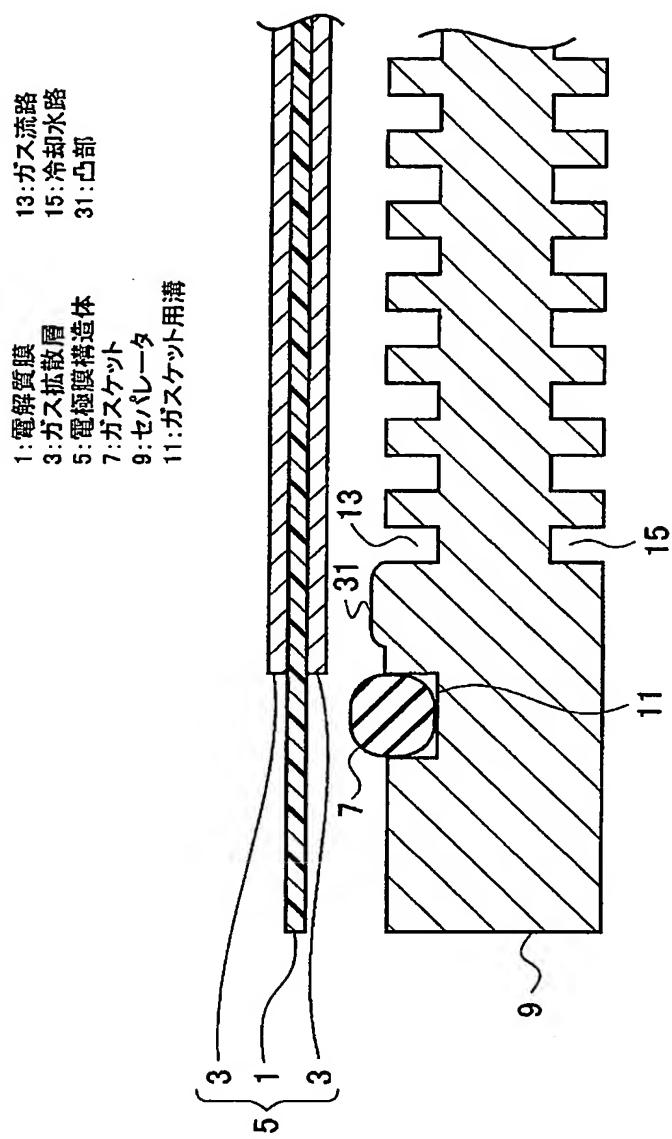
21…凸部

出証特 2003-3112551

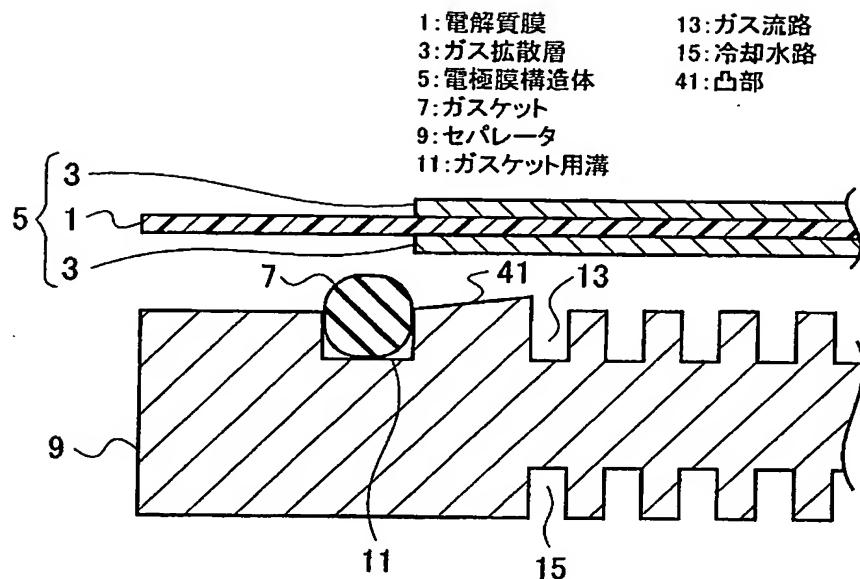
【書類名】 図面
【図 1】



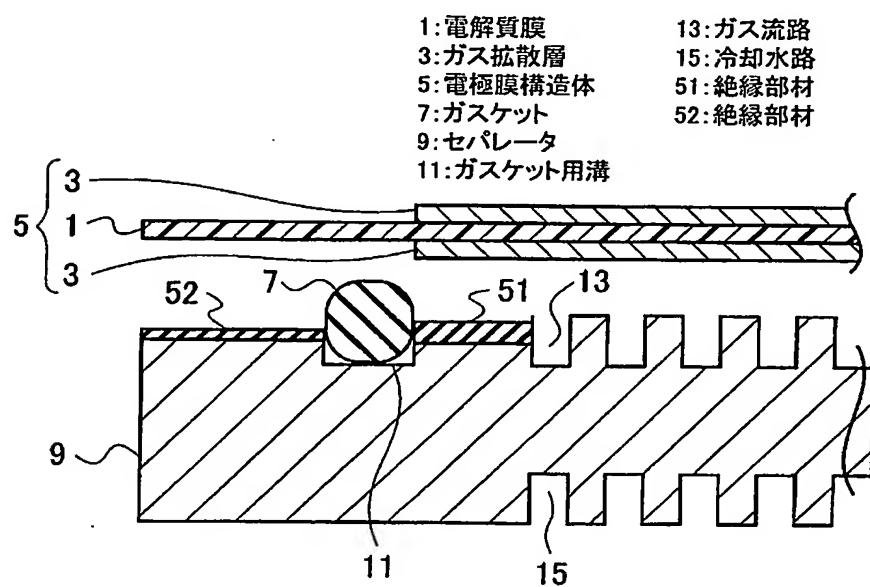
【図 2】



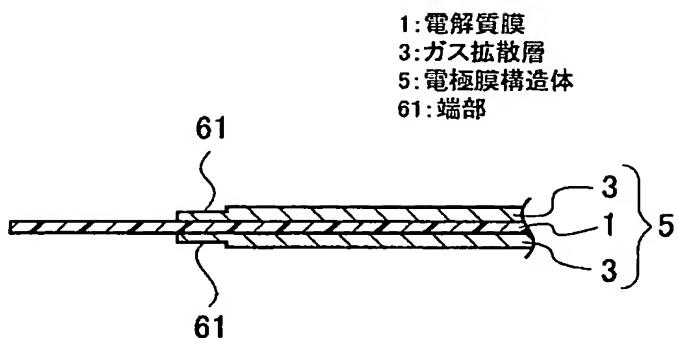
【図3】



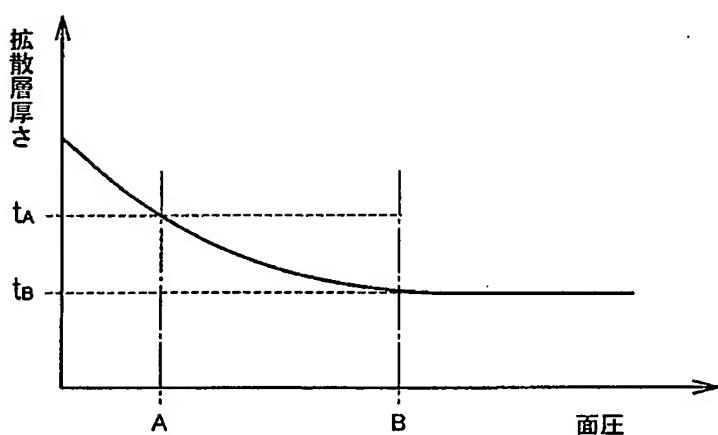
【図4】



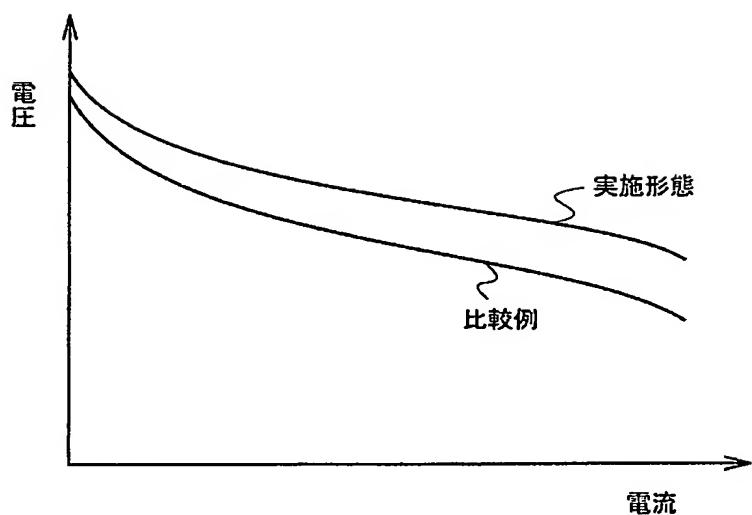
【図5】



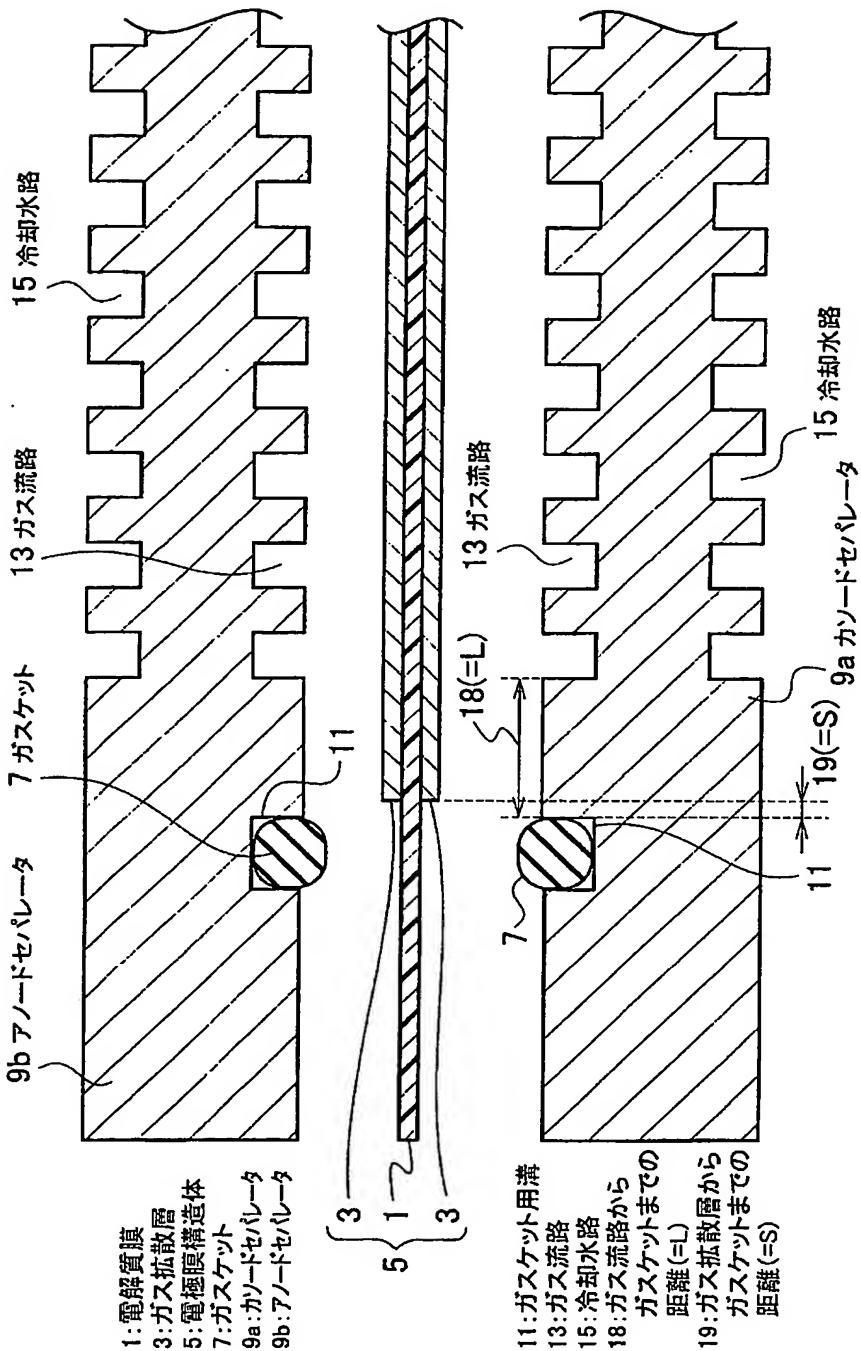
【図6】



【図7】



【図8】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 セルに導入した反応ガスがガス拡散層内の反応領域外を無駄に流れる
ことを抑止し、燃料電池の効率を高める。

【解決手段】 電解質膜1の両面にガス拡散層3が形成された電極膜構造体5を
セパレータ9で挟んで構成される燃料電池において、セパレータ9のガス流路1
3の外側を囲むようにセパレータ9の主面に対して凸となる凸部21を設ける。
この凸部21に対向する位置のガス拡散層3を圧縮させて、セパレータ9のガス
流路13の外側に位置する電極膜構造体のガス拡散層3の気孔率が、ガス流路1
3に対向する位置における気孔率よりも小さくする。

【選択図】 図1

特願 2002-382139

出願人履歴情報

識別番号 [000003997]

1. 変更年月日 1990年 8月31日

[変更理由] 新規登録

住 所 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地

氏 名 日産自動車株式会社

出証番号 出証特 2003-3112551

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.